

Composite sheet material used for prodn. of e.g. compression moulded car parts - contains a polypropylene matrix, comprising recycled bottle tops, and fibre mat reinforcement

Publication number: DE4226516 (A1)

Publication date: 1994-02-17

Inventor(s): ITTEMANN PETER DR [DE]; BAUMGARTL HORST DR [DE]; WAHL LUDWIG [DE]; SCHLARB ALOIS DR [DE]; BRENTROP KARL-LUDWIG [DE] +

Applicant(s): BASF AG [DE] +

Classification:


- international: **C08J11/06; C08J5/04; C08J11/00; C08J5/04;** (IPC1-7): C08J11/06; C08J5/04; C08K7/14; C08L23/08; C08L23/10; C08L23/10; C08L23/12; C08L23/16; C08L31/04; C08L51/06; C08L53/00


- European: C08J11/06; C08J5/04G

Application number: DE19924226516 19920811

Priority number(s): DE19924226516 19920811

Also published as:

 NL9301388 (A)

 CH685437 (A5)

Abstract of DE 4226516 (A1)

Composite sheet material (I) is claimed, with a polypropylene (PP) matrix (II) and fibre mat reinforcement (III), i.e. a GMPP composite. At least 5 wt.% of the matrix (II) consists of recycled beverage bottle tops. Also claimed is a process for the prodn. of (I) which comprises melting the bottle tops (opt. after cleaning and crushing) in an extruder and opt. mixing with other matrix components (B,C,D; see below), and then pressing the melt together with fibre mat (III). Pref. matrix (II) contains (A) 5-100 wt.% recycled bottle tops, (B) 0-95 wt.% fresh PP, (C) 0-80 wt.% thermoplastic other than (B) and (D) recycled fibre-reinforced PP. Component (A) contains 80-100 wt.% heterophase polypropylene/polyethylene copolymer contg. 4-15 wt.% ethylene units and 20-0 wt.% EVA copolymer contg. 4-15 wt.% vinyl acetate units. (I) contains 20-60 wt.% glass fibres mat (III). USE/ADVANTAGE - Used for the prodn. of compression moulded or deep-drawn parts for cars, machine construction, domestic appliances etc.. The invention enables the prodn. of a useful GMPP material partly or wholly from recycled bottle tops, e.g. screw tops from soft drink bottles.

~~~~~  
Data supplied from the **espacenet** database — Worldwide



①⑨ BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENTAMT

①⑫ **Offenlegungsschrift**  
①⑩ **DE 42 26 516 A 1**

②① Aktenzeichen: P 42 26 516.9  
②② Anmeldetag: 11. 8. 92  
②③ Offenlegungstag: 17. 2. 94

⑤① Int. Cl.<sup>5</sup>:  
**C 08 L 23/10**  
C 08 J 5/04  
C 08 J 11/06  
C 08 K 7/14  
// (C08L 23/10,23:12,  
23:16,51:06,53:00)  
(C08L 23/08,31:04)

DE 42 26 516 A 1

⑦① Anmelder:  
BASF AG, 67063 Ludwigshafen, DE

⑦② Erfinder:  
Ittemann, Peter, Dr., 6800 Mannheim, DE; Baumgartl,  
Horst, Dr., 6500 Mainz, DE; Wahl, Ludwig, 6707  
Schifferstadt, DE; Schlarb, Alois, Dr., 6710  
Frankenthal, DE; Brentrup, Karl-Ludwig, 4500  
Osnabrück, DE

⑤④ Flächiger Verbundwerkstoff

⑤⑦ Die Erfindung betrifft einen flächigen Verbundwerkstoff  
aus einer Polypropylenmatrix und Verstärkungsfasermatten,  
wobei die Matrix zu mindestens 5% aus einem Getränkefla-  
schendeckel-Rezyklat besteht.

DE 42 26 516 A 1

## Beschreibung

Die Erfindung betrifft einen flächigen Verbundwerkstoff aus einer Polypropylenmatrix und Verstärkungsfasermatten.

Verbundwerkstoffe aus glasmattenverstärktem Polypropylen (GMPP) werden in zunehmendem Maß im Automobilsektor als Bauteile im nicht sichtbaren Bereich verwendet. Es ist auch schon vorgeschlagen worden, bei der GMPP-Herstellung Rezyklat aus Abfällen der GMPP-Verarbeitung zuzusetzen, um diese einer Wiederverwendung zuzuführen.

Es wurde nun gefunden, daß auch Getränkeflaschendeckel-Rezyklat auf Basis von Polypropylen ganz oder teilweise als Thermoplast-Matrix bei der GMPP-Herstellung verwendet werden kann.

Gegenstand der Erfindung ist demzufolge ein flächiger Verbundwerkstoff aus einer Polypropylen-Matrix und Verstärkungsfasermatten, bei dem mindestens 5 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 20 Gew.-% der Matrix aus Getränkeflaschendeckel-Rezyklat besteht.

Es hat sich überraschenderweise gezeigt, daß die Getränkeflaschendeckel ohne aufwendige Vorbehandlung direkt als Matrix bei der GMPP-Herstellung eingesetzt werden können, und daß Formteile, die aus dem erfindungsgemäßen Verbundwerkstoff hergestellt wurden, nur unwesentlich schlechtere Eigenschaften haben als solche aus Verbundwerkstoffen mit frischer Polypropylenmatrix.

Ein Beispiel für Getränkeflaschendeckel sind Deckel von Coca-Cola-Flaschen. Es handelt sich um Schraubverschlüsse, die mit dem Leergut zusammen zurückgegeben und gesammelt werden. Sie bestehen aus Polypropylen, welches zur Elastifizierung 4—15 Gew.-% Ethylen in Form von Polymerblöcken einpolymerisiert enthält. Zur Erhöhung der Gasundurchlässigkeit enthält der Deckel im allgemeinen eine Schicht aus einem Ethylen/Vinylacetat-Copolymerem mit einem Vinylacetat-Gehalt von 4—15 Gew.-%, die bis zu 20% seines Gewichts ausmachen kann.

Die Getränkeflaschendeckel können grundsätzlich ohne Vorbehandlung direkt als Matrixmaterial zur Herstellung des Verbundwerkstoffs eingesetzt werden; es ist jedoch zweckmäßig, sie vorher durch einfaches Waschen zu reinigen und auf eine optimale Teilchengröße von etwa 1—10 mm zu zerkleinern. Dies kann in einfachen Hammermühlen oder Schneidmühlen geschehen, wobei das Schüttvolumen von etwa 150 kg/m<sup>3</sup> auf etwa 400 kg/m<sup>3</sup> zunimmt.

Während des Aufschmelzens im Extruder kann — falls erforderlich — die Viskosität des Rezyklat-Polypropylen verringert werden, indem man es einem peroxidischen Abbau in der Schmelze unterwirft, wobei der Schmelzindex MFI beispielsweise von etwa 7 auf 10 bis 500 (230°C, 2,16 kg) erhöht wird.

Grundsätzlich ist es möglich, die ganze Polypropylen-Matrix aus dem Rezyklat herzustellen, es ist jedoch in vielen Fällen zweckmäßig, frisches Polypropylen zuzumischen. Vorzugsweise hat die Matrix dann folgende Zusammensetzung:

- A. 5—100 Gew.-% Getränkeflaschendeckel-Rezyklat,
- B. 0—95 Gew.-% frisches Polypropylen,
- C. 0—80 Gew.-% eines von B verschiedenen Thermoplasten,
- D. 0—70 Gew.-% Rezyklat eines faserverstärkten Polypropylen.

Als frisches Polypropylen B kommt nicht nur Homopolymerisat in Frage, sondern auch Copolymerisate oder Propfpolymerisate des Propylens.

Bevorzugte Thermoplasten C sind Polyamid, Polyethylen, Polycarbonat und Polybutylenterephthalat.

Das Rezyklat D kann aus Abfällen bei der GMPP-Verarbeitung bestehen oder aus wiederaufgearbeiteten Spritzgußteilen.

Die Matrix für den erfindungsgemäßen Verbundwerkstoff wird je nach Zusammensetzung bei Temperaturen zwischen 180 und 260°C aufgeschmolzen. Dabei können die üblichen Zusatzstoffe, wie Stabilisatoren, Fließhilfsmittel und Farbstoffe zugesetzt werden.

Die Schmelze wird dann mit Verstärkungsfasermatten zusammengeführt, vorzugsweise auf einer Doppelbandpresse, wie in DE-B 29 48 235 beschrieben. Als Verstärkungsfasern werden vorzugsweise Glasfasern eingesetzt, man kann jedoch auch Kohlenstoff-Fasern und Naturfasern, z. B. aus Sisal oder Jute verwenden. Glasfasermatten weisen gewöhnlich eine Flächenmasse von 200 bis 1200 g · m<sup>-2</sup> auf; der Glasfasergehalt des Verbundwerkstoffs beträgt vorzugsweise 20 bis 60 Gew.-%. Die Fasermatten können in genadelter Form und/oder durch Kunstharz gebunden eingesetzt werden.

Die erfindungsgemäßen Verbundwerkstoffe können zugeschnitten und nach üblichen Methoden durch Pressen oder Tiefziehen bei Temperaturen oberhalb des Erweichungsbereichs des Thermoplasten zu Formteilen verarbeitet werden, die z. B. in der Automobilindustrie, im Maschinenbau und für Haushaltsgeräte Anwendung finden.

Die in den Beispielen genannten Teile und Prozente beziehen sich auf das Gewicht.

## Beispiel 1

a) Zwei Verstärkungsfasermatten mit einem Flächengewicht von jeweils 340 g · m<sup>-2</sup>, bestehend aus harzgebundenen, endlosverlegten Glasfasern wurden mit einem Schmelzefilm, bestehend aus

50 Teile zerkleinertem Rezyklat (aus 90% Polypropylen mit 7% Ethyleneinheiten und 10% Ethylvinylacetat-Copolymer mit 8% Vinylacetateinheiten),

50 Teile frischem Polypropylen (MFI 70, 230°C; 2,16 kg),

2 Teile eines Stabilisatorbatches auf Basis eines Gemisches aus sterisch gehindertem Phenolderivat, sterisch gehindertem Triarylphosphat und Dialkylester der Thiopropionsäure in Polypropylen,  
1,5 Teile Rußbatch (30% Ruß)

auf einer Doppelbandpresse zu einem Formpreß-Halbzeug mit einem Glasgehalt von 30% und einer Dicke von 2,0 mm verarbeitet. Die Schmelzetemperatur an der Extruderdüse betrug 220°C, die Temperatur der Heißpreßzone 230°C, die Kühlpreßzone wurde mit Wasser gekühlt. Das so hergestellte Halbzeug wurde in einem Kontaktofen über die Schmelztemperatur der Matrix erhitzt, in eine auf 40°C temperierte Preßform überführt und dort verdichtet.

b) Versuch a wurde wiederholt, wobei aber 100 Teile frisches Polypropylen ohne Rezyklat eingesetzt wurde.

c) Die mechanischen Eigenschaften der verdichteten Formteile wurden gemessen:

| Formteil | Zugfestigkeit<br>(nach EN 61) | E-Modul<br>(nach EN 61) | Schlagzähigkeit<br>(nach ISO 179) |
|----------|-------------------------------|-------------------------|-----------------------------------|
| a        | 51 MPa                        | 4860 MPa                | 55 kJ • m <sup>2</sup>            |
| b        | 51 MPa                        | 4540 MPa                | 52 kJ • m <sup>2</sup>            |

### Beispiel 2

Zwei Verstärkungsfasermatten, bestehend aus genadelten Schnittglasfasermatten mit einem Flächengewicht von 660 g • m<sup>-2</sup> wurden mit drei Schmelzeffilen aus dem zerkleinerten Rezyklat des Beispiels 1 auf einer Doppelbandpresse zu einem Fließpreßhalbzeug verarbeitet. Beim Aufschmelzen des Rezyklats wurde dieses durch Peroxid-Zusatz von einem Schmelzindex von 7,8 auf 70 (230°C, 2,16 kg) abgebaut; es wurden die gleichen Mengen Stabilisator und Ruß wie in Beispiel 1 zugesetzt.

Die Schmelzetemperatur an der Extruderdüse betrug 220°C, die Temperatur der Heißpreßzone der Doppelbandpresse betrug 230°C, die Kühlpreßzone wurde mit Wasser von Raumtemperatur gekühlt.

Die Abzugsgeschwindigkeit wurde zwischen 0,5 m/min und 4 m/min variiert. Die Dicke des entstandenen Halbzeugs liegt bei 3,8 mm bei einem Glasgehalt von 30 Gew.-%.

Mechanische Eigenschaften des umgepreßten Halbzeugs (Aufheiztemperatur 210°C, Halbzeug von 3,8 mm auf 2 mm zusammengepreßt unter gleichzeitigem Fließen):

Zugfestigkeit (geprüft nach EN 61): 52 MPa

Elastizitätsmodul (EN 61, 0,05—0,5% Dehnung): 4200 MPa

### Patentansprüche

1. Flächiger Verbundwerkstoff aus einer Polypropylenmatrix und Verstärkungsfasermatten, **dadurch gekennzeichnet**, daß mindestens 5 Gew.-% der Matrix aus Getränkeflaschendeckel-Rezyklat bestehen.

2. Flächiger Verbundwerkstoff nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Matrix folgende Zusammensetzung hat:

A. 5—100 Gew.-% Getränkeflaschendeckel-Rezyklat,

B. 0—95 Gew.-% frisches Polypropylen,

C. 0—80 Gew.-% eines von B verschiedenen Thermoplasten,

D. 0—70 Gew.-% Rezyklat eines faserverstärkten Polypropylens.

3. Flächiger Verbundwerkstoff nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Rezyklat A folgende Zusammensetzung hat:

80—100 Gew.-% eines heterophasigen Polypropylen/Polyethylen-Copolymeren mit 4—15 Gew.-% Ethyleneinheiten,

20—0 Gew.-% eines Ethylen/Vinylacetat-Copolymeren mit 4—15 Gew.-% Vinylacetateinheiten.

4. Flächiger Verbundwerkstoff nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Verstärkungsfasern Glasfasern sind und der Glasfasergehalt 20—60 Gew.-% beträgt.

5. Verfahren zur Herstellung des flächigen Verbundwerkstoffs nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Getränkeflaschendeckel, ggf. nach Reinigung und Zerkleinerung, in einem Extruder aufgeschmolzen, dabei ggf. mit weiteren Matrixbestandteilen B, C und D vermischt, und die Schmelze mit Verstärkungsfasermatten zusammen verpreßt wird.

- Leerseite -